

1052 000 5

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-289358

(43)Date of publication of application : 04.10.2002

(51)Int.Cl.

H05B 33/24

H05B 33/14

H05B 33/22

(21)Application number : 2001-085502

(71)Applicant : RICOH CO LTD

(22)Date of filing : 23.03.2001

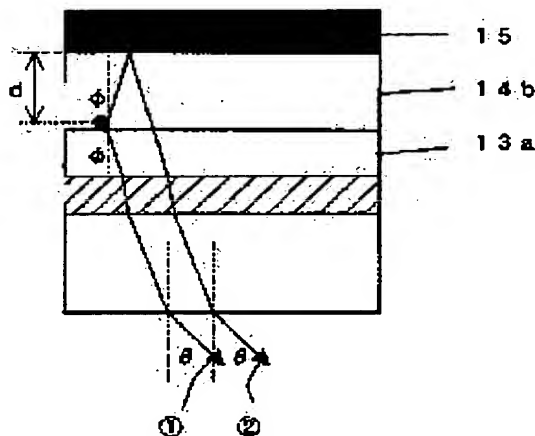
(72)Inventor : HIGA MASAKATSU  
FUJIMURA HIROSHI  
MATSUMOTO FUMINAO  
MATSUKI YUMI  
KIMURA OKITOSHI  
OKADA TAKASHI  
KATO TAKUJI

**(54) ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE ELEMENT****(57)Abstract:**

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide an organic electroluminescence(EL) element having high luminescence efficiency (light extraction efficiency), and low power consumption in high luminosity.

**SOLUTION:** The light, which is generated within the organic EL element, has two courses of the light (1), which directly goes ahead of the element, and the light (2), which goes ahead of the element after reflecting from a negative electrode 15. Since there is light pass difference, these light interfere mutually.

The phase difference  $\delta$  between the light, which comes out from a luminescence layer and goes directly ahead of the element, and the light, which reflected by the negative electrode, is obtained by  $\delta = \pi + 4\pi L / \lambda$  concerning to the normal direction of a substrate, in which  $\lambda$  is wavelength, and L is an optical distance from a light emitting position to a reflective face. The optical distance L is given by an optical film thickness  $nd$  of an organic material which exists in from the luminescence position to the reflecting face ( $n$  is a refractive index and  $d$  is a film thickness). When the organic material, which exists from the luminescence position to the reflecting face, consists of a plurality of the layers, the optical distance L is given as the sum of the optical distance (optical film thickness) of each the organic layers.

**LEGAL STATUS**

THIS PAGE BLANK (USPTO)

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

THIS PAGE BLANK (USPTO)

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2002-289358

(P2002-289358A)

(43) 公開日 平成14年10月4日 (2002.10.4)

(51) Int.Cl.<sup>7</sup>

H 0 5 B 33/24

33/14

33/22

識別記号

F I

H 0 5 B 33/24

33/14

33/22

テーマコード(参考)

3 K 0 0 7

A

D

B

審査請求 未請求 請求項の数20 O L (全 14 頁)

(21) 出願番号

特願2001-85502(P2001-85502)

(22) 出願日

平成13年3月23日(2001.3.23)

(71) 出願人 000006747

株式会社リコー

東京都大田区中馬込1丁目3番6号

(72) 発明者 比嘉 政勝

東京都大田区中馬込1丁目3番6号 株式

会社リコー内

(72) 発明者 藤村 浩

東京都大田区中馬込1丁目3番6号 株式

会社リコー内

(72) 発明者 松本 文直

東京都大田区中馬込1丁目3番6号 株式

会社リコー内

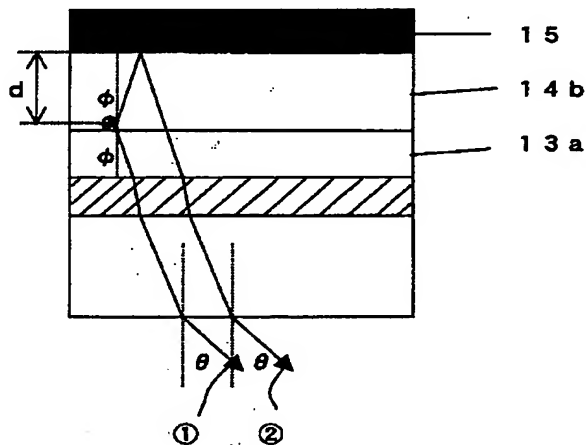
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子

(57) 【要約】

【課題】 発光効率(光の取り出し効率)が高く、高輝度で低消費電力の有機エレクトロルミネッセンス(E L)素子を提供すること。

【解決手段】 有機E L素子内で発光した光は、素子の前方に直接向かう光①と陰極15で反射してから素子の前方に向かう光②の2つの経路がある。これらの光は、光路差があるので互いに干渉する。発光層から出て素子の前方に直接向かう光と陰極で反射した光の位相差 $\delta$ は、基板法線方向について $\delta = \pi + 4\pi L / \lambda$ で求められ、 $\lambda$ は波長、 $L$ は発光位置から反射面までの光学的距離である。光学的距離 $L$ は、発光位置から反射面までに存在する有機材料の光学膜厚 $nd$ で与えられる( $n$ は屈折率、 $d$ は膜厚)。発光位置から反射面までに存在する有機材料が複数の層からなる場合には、光学的距離 $L$ は、各有機層の光学的距離(光学膜厚)の和となる。



## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 透明電極からなる陽極と、  
前記陽極上に少なくとも正孔輸送層と電子輸送層の 2 層  
を有して成膜された有機多層膜と、  
前記有機多層膜上に金属からなる鏡面反射膜で作製され  
た陰極と、を備え、  
前記有機多層膜の電子輸送層の光学膜厚  $n d$  は、  
 $n d = (2 N - 1) \lambda / 4$

( $n$  は屈折率、 $d$  は膜厚、 $\lambda$  は発光の中心波長、 $N$  は正  
の整数) なる関係を満たすことを特徴とする有機エレクト  
ロルミネッセンス素子。

【請求項 2】 透明電極からなる陽極と、  
前記陽極上に正孔輸送層、電子輸送性発光層の順で 2 層  
を積層して成膜された有機多層膜と、  
前記有機多層膜上に金属からなる鏡面反射膜で作製され  
た陰極と、を備え、  
前記有機多層膜の電子輸送性発光層の光学膜厚  $n d$  は、  
 $n d = (2 N - 1) \lambda / 4$

( $n$  は屈折率、 $d$  は膜厚、 $\lambda$  は発光の中心波長、 $N$  は正  
の整数) なる関係を満たすことを特徴とする有機エレクト  
ロルミネッセンス素子。

【請求項 3】 透明電極からなる陽極と、  
前記陽極上に正孔注入層、正孔輸送層、電子輸送性発光  
層の順で 3 層を積層して成膜された有機多層膜と、  
前記有機多層膜上に金属からなる鏡面反射膜で作製され  
た陰極と、を備え、  
前記有機多層膜の電子輸送性発光層の光学膜厚  $n d$  は、  
 $n d = (2 N - 1) \lambda / 4$

( $n$  は屈折率、 $d$  は膜厚、 $\lambda$  は発光の中心波長、 $N$  は正  
の整数) なる関係を満たすことを特徴とする有機エレクト  
ロルミネッセンス素子。

【請求項 4】 前記電子輸送性発光層は、前記正孔輸送  
層との界面付近に微量の蛍光性材料がドーピングされて  
いることを特徴とする請求項 2 または請求項 3 記載の有  
機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 5】 透明電極からなる陽極と、  
前記陽極上に正孔輸送層、膜厚が 30 nm 以下の発光  
層、電子輸送層の順で 3 層を積層して成膜された有機多  
層膜と、  
前記有機多層膜上に金属からなる鏡面反射膜で作製され  
た陰極と、を備え、  
前記有機多層膜の電子輸送層の光学膜厚  $n d$  は、  
 $n d = (2 N - 1) \lambda / 4$

( $n$  は屈折率、 $d$  は膜厚、 $\lambda$  は発光の中心波長、 $N$  は正  
の整数) なる関係を満たすことを特徴とする有機エレクト  
ロルミネッセンス素子。

【請求項 6】 前記発光層は、微量の蛍光性材料がドー  
ピングされていることを特徴とする請求項 5 記載の有機  
エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 7】 透明電極からなる陽極と、

前記陽極上に正孔輸送性発光層、電子輸送層の順で 2 層  
を積層して成膜された有機多層膜と、  
前記有機多層膜上に金属からなる鏡面反射膜で作製され  
た陰極と、を備え、  
前記有機多層膜の電子輸送層の光学膜厚  $n d$  は、  
 $n d = (2 N - 1) \lambda / 4$

( $n$  は屈折率、 $d$  は膜厚、 $\lambda$  は発光の中心波長、 $N$  は正  
の整数) なる関係を満たすことを特徴とする有機エレクト  
ロルミネッセンス素子。

【請求項 8】 前記陰極は、反射率が 50% 以上の金属  
膜であることを特徴とする請求項 1、請求項 2、請求項  
3、請求項 4、請求項 5、請求項 6、請求項 7 のうちい  
ずれか 1 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 9】 前記正の整数  $N$  は、1 であることを特徴  
とする請求項 1、請求項 2、請求項 3、請求項 4、請求  
項 5、請求項 6、請求項 7、請求項 8 のうちいずれか 1  
に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 10】 前記電子輸送層または前記電子輸送性  
発光層の光学膜厚  $n d$  は、前記発光の中心波長  $\pm \lambda / 8$   
以内の誤差範囲内であることを特徴とする請求項 1、請  
求項 2、請求項 3、請求項 4、請求項 5、請求項 6、請  
求項 7、請求項 8、請求項 9 のうちいずれか 1 に記載の  
有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 11】 透明電極からなる陽極と、  
前記陽極上に少なくとも正孔輸送層と電子輸送層の 2 層  
を有して成膜された有機多層膜と、  
前記有機多層膜上に複素屈折率  $n' = n r - i k r$  を有  
する金属膜で作製された陰極と、を備え、  
前記有機多層膜の電子輸送層の光学膜厚  $n d$  は、  
 $n d = (\lambda / 4) (2 N - \delta r / \pi)$   
 $\delta r = \arctan (2 n k r / (n^2 - (n_r)^2 - (K_r)^2)) + \pi$

( $n^2 \leq n_r^2 + K_r^2$  であり、 $n$  は屈折率、 $d$  は膜厚、 $\lambda$   
は発光の中心波長、 $N$  は正の整数) なる関係を満たすこ  
とを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 12】 透明電極からなる陽極と、  
前記陽極上に正孔輸送層、電子輸送性発光層の順で 2 層  
を積層して成膜された有機多層膜と、  
前記有機多層膜上に複素屈折率  $n' = n r - i k r$  を有  
する金属膜で作製された陰極と、を備え、  
前記有機多層膜の電子輸送性発光層の光学膜厚  $n d$  は、  
 $n d = (\lambda / 4) (2 N - \delta r / \pi)$   
 $\delta r = \arctan (2 n k r / (n^2 - (n_r)^2 - (K_r)^2)) + \pi$

( $n^2 \leq n_r^2 + K_r^2$  であり、 $n$  は屈折率、 $d$  は膜厚、 $\lambda$   
は発光の中心波長、 $N$  は正の整数) なる関係を満たすこ  
とを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 13】 透明電極からなる陽極と、  
前記陽極上に正孔注入層、正孔輸送層、電子輸送性発光  
層の順で 3 層を積層して成膜された有機多層膜と、

前記有機多層膜上に複素屈折率 $n' = n_r - i k_r$ を有する金属膜で作製された陰極と、を備え、

前記有機多層膜の電子輸送性発光層の光学膜厚 $nd$ は、  
 $nd = (\lambda/4) (2N - \delta r/\pi)$

$\delta r = \arctan(2nk_r / (n^2 - (n_r)^2 - (k_r)^2)) + \pi$

( $n^2 \leq n_r^2 + K_r^2$ であり、 $n$ は屈折率、 $d$ は膜厚、 $\lambda$ は発光の中心波長、 $N$ は正の整数)なる関係を満たすことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項14】 前記電子輸送性発光層は、前記正孔輸送層との界面付近に微量の蛍光性材料がドーピングされていることを特徴とする請求項12または請求項13記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項15】 透明電極からなる陽極と、前記陽極上に正孔輸送層、膜厚が30nm以下の発光層、電子輸送層の順で3層を積層して成膜された有機多層膜と、

前記有機多層膜上に複素屈折率 $n' = n_r - i k_r$ を有する金属膜で作製された陰極と、を備え、

前記有機多層膜の電子輸送層の光学膜厚 $nd$ は、

$nd = (\lambda/4) (2N - \delta r/\pi)$

$\delta r = \arctan(2nk_r / (n^2 - (n_r)^2 - (k_r)^2)) + \pi$

( $n^2 \leq n_r^2 + K_r^2$ であり、 $n$ は屈折率、 $d$ は膜厚、 $\lambda$ は発光の中心波長、 $N$ は正の整数)なる関係を満たすことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項16】 前記発光層は、微量の蛍光性材料がドーピングされていることを特徴とする請求項15記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項17】 透明電極からなる陽極と、前記陽極上に正孔輸送性発光層、電子輸送層の順で2層を積層して成膜された有機多層膜と、

前記有機多層膜上に複素屈折率 $n' = n_r - i k_r$ を有する金属膜で作製された陰極と、を備え、

前記有機多層膜の電子輸送層の光学膜厚 $nd$ は、

$nd = (\lambda/4) (2N - \delta r/\pi)$

$\delta r = \arctan(2nk_r / (n^2 - (n_r)^2 - (k_r)^2)) + \pi$

( $n^2 \leq n_r^2 + K_r^2$ であり、 $n$ は屈折率、 $d$ は膜厚、 $\lambda$ は発光の中心波長、 $N$ は正の整数)なる関係を満たすことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項18】 前記陰極は、反射率が50%以上の金属膜であることを特徴とする請求項11、請求項12、請求項13、請求項14、請求項15、請求項16、請求項17のうちいずれか1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項19】 前記正の整数 $N$ は、1であることを特徴とする請求項11、請求項12、請求項13、請求項14、請求項15、請求項16、請求項17、請求項18のうちいずれか1に記載の有機エレクトロルミネッセ

ンス素子。

【請求項20】 前記電子輸送層または前記電子輸送性発光層の光学膜厚 $nd$ は、前記発光の中心波長 $\pm \lambda/8$ 以内の誤差範囲内であることを特徴とする請求項11、請求項12、請求項13、請求項14、請求項15、請求項16、請求項17、請求項18、請求項19のうちいずれか1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、多色表示可能な平面型の表示装置、光源としても利用可能な固体発光素子である発光効率が高い有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、有機EL素子とする）に関する。

【0002】

【従来の技術】近年、インターネットに代表される情報技術の進歩に伴って、ノート型パーソナルコンピュータ、携帯端末、あるいは携帯電話などの情報機器が急速に普及してきている。これらの情報機器からの膨大な情報を瞬時に処理し、表示することのできる高品質、高性能な平面型の表示装置が求められている。平面型の表示装置の代表的なものとしては液晶表示装置がある。液晶表示装置は、低電圧駆動、低消費電圧であるという特徴を生かして、ノート型パーソナルコンピュータや携帯電話用の表示装置を初めとして、多くの電子製品に使用されている。ところが、液晶素子そのものは低消費電力であるにも関わらず、自発光型ではないので明るく高品質のカラー表示を行うためにはバックライトを必要とし、このバックライトの駆動に大きな電力を必要とする。また、応答速度が遅いために、満足できる品質の動画表示が難しく、視野角が狭いものである。一方、有機EL素子は低電圧の直流駆動が可能であり、広視野角、高視認性、高速応答性という表示素子として優れた性能を有する自発光型の表示素子として期待されている。また、積層型の素子構成で低電圧直流駆動、高発光効率、高輝度発光が報告されて以来、実用化に向けて活発な研究がなされている（特公昭64-7635号、特公平6-32307号、Appl. Phys. Lett., 51, 913 (1987) 参照）。

【0003】有機EL素子の基本的な技術課題として、低電圧駆動、高発光効率化、高輝度化、多色発光がある。有機EL素子の発光機構は以下のように理解されている。素子に電界を印加すると陰極からは電子、陽極からは正孔がそれぞれキャリアとして注入され、この両キャリアは発光層で再結合して励起子を発生し、エネルギーを放出するときに電気エネルギーを光エネルギーに変換して発光する。陽極には、正孔注入能力を高くするために一般に仕事関数の大きな材料がよいとされ、さらに発光を外部に取出すための透明性が要求されるので、陽極材料としてITO（インジウムスズ酸化物）のよう

な透明電極が最も多く用いられる。陰極には、仕事関数の小さな金属やその合金が用いられる。

【0004】アルカリ金属、アルカリ土類金属および第3族金属があるが、安価で比較的に化学的安定性のよい材料であるAlやMgおよびその合金が最もよく用いられている。発光効率の向上のためには、陰極からの電子と陽極からの正孔の両キャリアを効率よく発光層に注入、輸送し、かつ注入された両キャリアのできるだけ多くを再結合させることが重要であるとされている。そのため、積層型の素子においては、キャリアの注入、輸送および発光という異なった機能を違う材料で分担させることによって、それぞれの材料を最適化して高い発光効率を実現できる可能性があることがわかり、活発に研究がなされるようになった。また、積層型の素子では、キャリアの再結合位置を電極から離れた位置に集約させるので、生成された励起子が電極の界面部分に移動して消失することを防いでいる。このような励起子の消失の影響は、電極から発光位置までの距離が約30nm以下にならない方がよい。

【0005】これまでに提案されている有機EL素子の構造には、有機多層膜の数によって主に2層型と3層型、およびこれらを基本とした改良型がある。2層型の素子は、発光層が電子輸送性または正孔輸送性を併せ持つものであって、正孔輸送層／電子輸送性発光層からなるもの（図13を参照）と正孔輸送性発光層／電子輸送層からなるもの（図14を参照）の2種類がある。正孔輸送層3a／電子輸送性発光層4bからなる2層型の素子は、ガラス基板1上の陽極2と電子輸送性をもった発光層である電子輸送層4aとの間に電子輸送性のほとんどない正孔輸送層3aを設けることで、効率よく正孔を注入、輸送すると共に陰極5から注入された電子を正孔輸送層3aと発光層の界面でブロックして、電子と正孔との結合効率を向上させることを目的とする。この場合、電子と正孔の再結合は正孔輸送層発光層3b／電子輸送性発光層4bの界面付近の発光層（発光位置）6でのみ発生し、その位置で最大の発光強度を示す。

【0006】正孔輸送性発光層／電子輸送層からなる2層型の素子は、陰極と正孔輸送性をもった発光層との間に正孔をブロックするための電子輸送層を設けることで、電子と正孔との結合効率を向上させることを狙ったものである。この場合、電子と正孔の再結合は正孔輸送性発光層／電子輸送層の界面付近の発光層でのみ発生し、その位置で最大の発光強度を示す。3層型の素子は、発光層とキャリアの輸送層を分離した正孔輸送層／発光層／電子輸送層からなるものである。あるいは、陽極からの正孔注入障壁を低くするために、正孔輸送層と陽極との間に陽極とのイオン化ポテンシャルの差が小さい正孔注入層をもう1層設けることもある。また、Appl. Phys. Lett., 57, 531 (1990) には、3層型の素子において発光層の膜厚を5nm

まで薄くしても発光効率は低下しないことが示されている。これは、発光が5nmの厚さの発光層中で起こっていることを示している。このように多層型の有機EL素子の発光は、2層型か3層型かによらず基本的に電子と正孔が再結合する界面のごく近傍でのみ起こる。この発光効率の改善は、現在でも有機EL素子の基本的な課題であり、これまでに多くの材料、構成が提案されている。

【0007】ところで、特開平4-137485号公報には、陽極／正孔輸送性発光層／電子輸送層／陰極の構成において、電子輸送層の厚さを30～60nmとして高輝度を得る電界発光素子が開示されている。また、特許第3065704号および特許第3065705号には、陰極での反射光の干渉効果を利用する方法が示されている。特許第2846571号公報には、選定された波長における発光強度を増強するように、陽極（透明電極）と有機多層膜との合計光学膜厚と屈折率を設定する有機エレクトロルミネッセンス素子が開示されている。これは、発光層の位置から陰極までの光学的距離を規定するものではなく、また、陽極（透明電極）と基板との界面での反射光と陰極での反射光との干渉を利用しているので、透明電極と基板との界面での反射率を大きくするために、透明電極には屈折率が1.8以上の高屈折性透明電極を使用することが記載されている。特許第2797883号には、発光層の両面に形成された反射鏡とで微小共振器を形成して、反射鏡間の光学的距離の制御で多色表示をする多色発光素子とその基板が開示されている。

【0008】Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 38 (1999) pp. 2799-2803, 「Evaluation of True Power Luminous Efficiency from Experimental Luminance Values」(T. Tsutsui and K. Yamamoto) には、透明電極(ITO)／正孔注入輸送層(TPD)／電子輸送性発光層(Alq)／陰極(MgAg)の構成の有機EL素子において、電子輸送性発光層(Alq)の膜厚を変化させて実験的に得られた発光スペクトルの変化、輝度の視角依存性から発光の取り出し効率を正しく評価する試みが報告されている。

【0009】

【発明が解決しようとする課題】上述のように自己発光型の表示素子としては、例えばプラズマ表示素子、有機EL素子が知られている。しかしながら、プラズマ表示素子は、低圧ガス中でのプラズマ発光を利用するもので、大型の表示装置には適しているが、薄型化、小型化には不向きであり、コスト面での課題が残っている。また、プラズマ発光のためには数100Vの高電圧交流駆動が必要とされ、低消費電力化には適していない。また、有機EL素子の発光効率の改善のために内部量子効

率の高い発光材料を用いても発光層から放射される光を有効に外部に取り出していないこと、すなわち光の取り出し効率が低いことに起因して、発光効率を高くできないという問題がある。これは、主に光取り出し側の基板面への入射角が臨界角を超えると全反射されるため、基板から外部に光を取り出すことができないことに起因している。例えば、通常のガラス基板では約25%の取り出し効率になると考えられている。したがって、有機EL素子の発光効率向上のためには、発光層からの光を有効に素子外部に取り出すことのできる素子構成にすることが望まれている。

【0010】従来から発光効率（発光の取り出し効率）を高める方法の一つとして、陰極からの反射光を有効に利用することが考えられる。すなわち、可視光領域で高い反射率を有する金属材料を陰極材料として用いれば、発光層から放射された光を素子前方（陽極側）に反射して有効に取り出すことができるが、発光層から出て素子の前方に直接向かう光と陰極で反射した光は互いに干渉しあうことが考えられ、この干渉効果についての正確かつ詳細な検討はなされていないのが現状である。また、上述の特開平4-137485号公報には、発光層と陰極との距離が発光強度を向上させるための重要な因子であることを示しているが、この時点では発光強度が電子輸送層の厚さに依存する理由については十分に解明されていないとしている。また、発光波長と膜厚との関係についての記述はみられず、光の干渉効果についての検討はなされていない。

【0011】また、特許第3065704号および特許第3065705号の従来技術では、EL層あるいは電子輸送層の膜厚を膜厚輝度減衰曲線特性の2番目に高い輝度の2次極大値を含む膜厚を有し、かつその振幅がその収束する収束輝度値を超える輝度を生ずる範囲内の膜厚に設定することが述べられているが、特許第3065704号に記載されている光の干渉効果としての光の強度を表す「数式3」は、陰極で反射する光のπラジアン位相変化を考慮しないで導かれたものであり、フレネルの反射の法則に反することになる。すなわち、フレネルの反射の法則によれば、光学的に疎な物質（屈折率の小さい物質）から密な物質（屈折率の大きな物質）に光が入射するとき、反射光の位相はπラジアンだけ変化することが知られている（例えば、「干渉および干渉性」（飯沼芳郎著、共立出版）のロイドの鏡と干渉性に関する記述を参照のこと）。一般に、反射率の高い金属表面は、いわゆる鏡面であって、反射光の位相は反射面ではπラジアン変化する。このように、陰極での反射光のπラジアン位相変化を無視してしまうと、発光強度の極大値を与えるEL層の膜厚を正確に求めることができないばかりか、逆に発光強度の極小値となる膜厚に設定してしまう可能性がある。

【0012】反射率の高い金属表面は、いわゆる鏡面で

あって、反射光の位相は反射面ではπラジアン変化すると考えるのが一般的であるが、実際の金属は複素屈折率を有するので、反射面での反射光の実質的な位相変化はπラジアンからずれてしまう。また、金属薄膜によって形成された半透過膜、あるいは吸収のある誘電体膜においても同様に反射面での反射光の実質的な位相変化はπラジアンからずれている。したがって、多様な陰極材料を選択するにあたっては、反射面での反射光の実質的な位相変化を考慮する必要があったが、これまでにこのような検討はなされていないのが現状である。また、特許第2846571号公報では、EL発光は陽極側の面から素子外部に取り出されるので陽極には可視光領域で高い透過率が要求され、陰極のように大きな反射率の陽極材料で構成することはできないので、強い干渉効果を期待することはできない。したがって、この従来技術で示された構成は色純度を向上させるためには有効であるが、大きな発光効率（光の取り出し効率）の大幅な改善を期待することはできない。同様に特許第2797883号も発光層の位置から陰極までの光学的距離を規定するものではない。さらに、光の干渉効果についての詳細な説明もなされていない。

【0013】そこで、本発明の目的は、発光効率（光の取り出し効率）が高く、高輝度で低消費電力の有機EL素子を提供することである。

【0014】

【課題を解決するための手段】請求項1記載の発明では、透明電極からなる陽極と、前記陽極上に少なくとも正孔輸送層と電子輸送層の2層を有して成膜された有機多層膜と、前記有機多層膜上に金属からなる鏡面反射膜で作製された陰極と、を備え、前記有機多層膜の電子輸送層の光学膜厚 $nd$ は、 $nd = (2N - 1)\lambda / 4$ 、

（ $n$ は屈折率、 $d$ は膜厚、 $\lambda$ は発光の中心波長、 $N$ は正の整数）なる関係を満たすことにより、前記目的を達成する。請求項2記載の発明では、透明電極からなる陽極と、前記陽極上に正孔輸送層、電子輸送性発光層の順で2層を積層して成膜された有機多層膜と、前記有機多層膜上に金属からなる鏡面反射膜で作製された陰極と、を備え、前記有機多層膜の電子輸送性発光層の光学膜厚 $nd$ は、 $nd = (2N - 1)\lambda / 4$ 、（ $n$ は屈折率、 $d$ は膜厚、 $\lambda$ は発光の中心波長、 $N$ は正の整数）なる関係を満たすことにより、前記目的を達成する。請求項3記載の発明では、透明電極からなる陽極と、前記陽極上に正孔注入層、正孔輸送層、電子輸送性発光層の順で3層を積層して成膜された有機多層膜と、前記有機多層膜上に金属からなる鏡面反射膜で作製された陰極と、を備え、前記有機多層膜の電子輸送性発光層の光学膜厚 $nd$ は、 $nd = (2N - 1)\lambda / 4$ 、（ $n$ は屈折率、 $d$ は膜厚、 $\lambda$ は発光の中心波長、 $N$ は正の整数）なる関係を満たすことにより、前記目的を達成する。請求項4記載の発明では、請求項2または請求項3記載の発明において、前

記電子輸送性発光層は、前記正孔輸送層との界面付近に微量の蛍光性材料がドーピングされていることにより、前記目的を達成する。

【0015】請求項5記載の発明では、透明電極からなる陽極と、前記陽極上に正孔輸送層、膜厚が30nm以下の発光層、電子輸送層の順で3層を積層して成膜された有機多層膜と、前記有機多層膜上に金属からなる鏡面反射膜で作製された陰極と、を備え、前記有機多層膜の電子輸送層の光学膜厚 $nd$ は、 $nd = (2N-1)\lambda/4$ 、( $n$ は屈折率、 $d$ は膜厚、 $\lambda$ は発光の中心波長、 $N$ は正の整数)なる関係を満たすことにより、前記目的を達成する。請求項6記載の発明では、請求項5記載の発明において、前記発光層は、微量の蛍光性材料がドーピングされていることにより、前記目的を達成する。

【0016】請求項7記載の発明では、透明電極からなる陽極と、前記陽極上に正孔輸送性発光層、電子輸送層の順で2層を積層して成膜された有機多層膜と、前記有機多層膜上に金属からなる鏡面反射膜で作製された陰極と、を備え、前記有機多層膜の電子輸送層の光学膜厚 $nd$ は、 $nd = (2N-1)\lambda/4$ 、( $n$ は屈折率、 $d$ は膜厚、 $\lambda$ は発光の中心波長、 $N$ は正の整数)なる関係を満たすことにより、前記目的を達成する。請求項8記載の発明では、請求項1、請求項2、請求項3、請求項4、請求項5、請求項6、請求項7のうちいずれか1に記載の発明において、前記陰極は、反射率が50%以上の金属膜であることにより、前記目的を達成する。請求項9記載の発明では、請求項1、請求項2、請求項3、請求項4、請求項5、請求項6、請求項7、請求項8のうちいずれか1に記載の発明において、前記正の整数 $N$ は、1であることにより、前記目的を達成する。請求項10記載の発明では、請求項1、請求項2、請求項3、請求項4、請求項5、請求項6、請求項7、請求項8、請求項9のうちいずれか1に記載の発明において、前記電子輸送層または前記電子輸送性発光層の光学膜厚 $nd$ は、前記発光の中心波長 $\pm \lambda/8$ 以内の誤差範囲内であることにより、前記目的を達成する。

【0017】請求項11記載の発明では、透明電極からなる陽極と、前記陽極上に少なくとも正孔輸送層と電子輸送層の2層を有して成膜された有機多層膜と、前記有機多層膜上に複素屈折率 $n' = nr - ikr$ を有する金属膜で作製された陰極と、を備え、前記有機多層膜の電子輸送層の光学膜厚 $nd$ は、 $nd = (\lambda/4)(2N - \delta r/\pi)$ 、 $\delta r = \arctan(2nk_r/(n^2 - (n_r)^2 - (K_r)^2)) + \pi$ 、( $n^2 \leq n_r^2 + K_r^2$ であり、 $n$ は屈折率、 $d$ は膜厚、 $\lambda$ は発光の中心波長、 $N$ は正の整数)なる関係を満たすことにより、前記目的を達成する。請求項12記載の発明では、透明電極からなる陽極と、前記陽極上に正孔輸送層、電子輸送性発光層の順で2層を積層して成膜された有機多層膜と、前記有機多層膜上に複素屈折率 $n' = nr - ikr$ を有する金属

膜で作製された陰極と、を備え、前記有機多層膜の電子輸送性発光層の光学膜厚 $nd$ は、 $nd = (\lambda/4)(2N - \delta r/\pi)$ 、 $\delta r = \arctan(2nk_r/(n^2 - (n_r)^2 - (K_r)^2)) + \pi$ 、( $n^2 \leq n_r^2 + K_r^2$ であり、 $n$ は屈折率、 $d$ は膜厚、 $\lambda$ は発光の中心波長、 $N$ は正の整数)なる関係を満たすことにより、前記目的を達成する。請求項13記載の発明では、透明電極からなる陽極と、前記陽極上に正孔注入層、正孔輸送層、電子輸送性発光層の順で3層を積層して成膜された有機多層膜と、前記有機多層膜上に複素屈折率 $n' = nr - ikr$ を有する金属膜で作製された陰極と、を備え、前記有機多層膜の電子輸送性発光層の光学膜厚 $nd$ は、 $nd = (\lambda/4)(2N - \delta r/\pi)$ 、 $\delta r = \arctan(2nk_r/(n^2 - (n_r)^2 - (K_r)^2)) + \pi$ 、( $n^2 \leq n_r^2 + K_r^2$ であり、 $n$ は屈折率、 $d$ は膜厚、 $\lambda$ は発光の中心波長、 $N$ は正の整数)なる関係を満たすことにより、前記目的を達成する。請求項14記載の発明では、請求項12または請求項13記載の発明において、前記電子輸送性発光層は、前記正孔輸送層との界面付近に微量の蛍光性材料がドーピングされていることにより、前記目的を達成する。

【0018】請求項15記載の発明では、透明電極からなる陽極と、前記陽極上に正孔輸送層、膜厚が30nm以下の発光層、電子輸送層の順で3層を積層して成膜された有機多層膜と、前記有機多層膜上に複素屈折率 $n' = nr - ikr$ を有する金属膜で作製された陰極と、を備え、前記有機多層膜の電子輸送層の光学膜厚 $nd$ は、 $nd = (\lambda/4)(2N - \delta r/\pi)$ 、 $\delta r = \arctan(2nk_r/(n^2 - (n_r)^2 - (K_r)^2)) + \pi$ 、( $n^2 \leq n_r^2 + K_r^2$ であり、 $n$ は屈折率、 $d$ は膜厚、 $\lambda$ は発光の中心波長、 $N$ は正の整数)なる関係を満たすことにより、前記目的を達成する。請求項16記載の発明では、請求項15記載の発明において、前記発光層は、微量の蛍光性材料がドーピングされていることにより、前記目的を達成する。

【0019】請求項17記載の発明では、透明電極からなる陽極と、前記陽極上に正孔輸送性発光層、電子輸送層の順で2層を積層して成膜された有機多層膜と、前記有機多層膜上に複素屈折率 $n' = nr - ikr$ を有する金属膜で作製された陰極と、を備え、前記有機多層膜の電子輸送層の光学膜厚 $nd$ は、 $nd = (\lambda/4)(2N - \delta r/\pi)$ 、 $\delta r = \arctan(2nk_r/(n^2 - (n_r)^2 - (K_r)^2)) + \pi$ 、( $n^2 \leq n_r^2 + K_r^2$ であり、 $n$ は屈折率、 $d$ は膜厚、 $\lambda$ は発光の中心波長、 $N$ は正の整数)なる関係を満たすことにより、前記目的を達成する。請求項18記載の発明では、請求項11、請求項12、請求項13、請求項14、請求項15、請求項16、請求項17のうちいずれか1に記載の発明において、前記陰極は、反射率が50%以上の金属膜であることにより、前記目的を達成する。請求項19記載の発明

では、請求項11、請求項12、請求項13、請求項14、請求項15、請求項16、請求項17、請求項18のうちいずれか1に記載の発明において、前記正の整数Nは、1であることにより、前記目的を達成する。請求項20記載の発明では、請求項11、請求項12、請求項13、請求項14、請求項15、請求項16、請求項17、請求項18、請求項19のうちいずれか1に記載の発明において、前記電子輸送層または前記電子輸送性発光層の光学膜厚 $n d$ は、前記発光の中心波長 $\pm \lambda / 8$ 以内の誤差範囲内であることにより、前記目的を達成する。

【0020】

【発明の実施の形態】以下、本発明の好適な実施の形態について図1ないし図12を参照して詳細に説明する。まず、第1の実施形態の有機EL素子について説明する。本実施の形態の有機EL素子は、陰極が金属からなる鏡面反射膜であり、発光層から出て素子の前方に直接向かう光と陰極で反射した光とが干渉効果によって強め合うように、発光位置から陰極までの光学的距離を設定されている。ここで、陰極が鏡面反射膜であるとは、有機層との界面で反射光の位相が入射光に対して実質的に $\pi$ ラジアンだけ変化することを意味するものであり、金属材料に限られるわけではないが、反射率が高く、電子注入効率の高い金属材料が最も適している。また、発光材料特有の発光スペクトルの中心波長に対して最適な素子構成となるようにして、最も強い光を有効に素子外部に取り出すようにする。

【0021】図1は、有機EL素子における光の干渉を示した図である。有機EL素子内で発光した光は、素子の前方に直接向かう光①と陰極15で反射してから素子の前方に向かう光②の2つの経路がある。これらの光は、光路差があるので互いに干渉する。発光層から出て\*

強度が最大になる条件： $L = (2N - 1) \lambda / 4$  (4)

強度が最小になる条件： $L = N \lambda / 2$  (5)

【0024】本実施の形態の有機EL素子は、式(4)の条件を満たすように構成されている。また、式(4)で与えられる最大強度の得られる光学的距離 $L$ からのずれ量が $\pm \lambda / 8$ の範囲内であれば、少なくとも収束強度値(膜厚が干渉長よりも厚い場合のように干渉効果が生じないときの光の強度値)よりも大きな強度が得られる。すなわち、本実施の形態において、式(4)を完全に満足するように素子を構成するが、少なくとも $\pm \lambda / 8$ の範囲内で式(4)をほぼ満たしていればよい。また、発光強度が最大になる光学的距離およびその設定可能範囲は波長によって異なるので、各種発光材料の発光スペクトルに応じて設定される。

【0025】また、本実施の形態の有機EL素子の構成は、図13や図14で示したような従来技術で開示されている2層型や3層型の素子、発光層の最大発光強度を示す界面位置がわかっている場合のすべてにおいて適用

\* 素子の前方に直接向かう光と陰極で反射した光の位相差 $\delta$ は、基板法線方向について以下の式(1)で求められる。

$$\delta = \pi + 4 \pi L / \lambda \quad (1)$$

【0022】ここで、 $\lambda$ は波長、 $L$ は発光位置から反射面までの光学的距離である。光学的距離 $L$ は、発光位置から反射面までに存在する有機材料(例えば、2層型の素子においては電子輸送層)の光学膜厚 $n d$ で与えられる( $n$ は屈折率、 $d$ は膜厚)。発光位置から反射面までに存在する有機材料が複数の層からなる場合には、光学的距離 $L$ は、各有機層の光学的距離(光学膜厚)の和となる。発光位置は、最大発光強度を示す正孔輸送層13a/電子輸送性発光層14bの界面、もしくは発光層(正孔輸送性)/電子輸送層の界面位置で代表することができる。発光層内の発光強度分布が無視できない程度であれば、電子輸送層の膜厚を若干調整(発光強度分布の半分程度だけ厚めに)することで対応することも可能である。

【0023】式(1)の右辺第一項の $\pi$ は、反射面での反射光の位相変化を意味する。直接光と反射光の干渉効果として素子外部に出てくる光の強度は、以下の式

$$(2) \text{ で与えられる } D(\lambda) \text{ に比例する。} \\ D(\lambda) = 1 + \cos \delta \quad (2)$$

発光材料自体の発光スペクトルを $P(\lambda)$ とすると、素子外部で観測される発光スペクトル $I(\lambda)$ は、式(3)で表される。

$$I(\lambda) = P(\lambda) D(\lambda) \quad (3)$$

したがって、干渉の効果としての光の強度は $\delta = 2N\pi$ のとき最大で、 $\delta = (2N + 1)\pi$ のとき最小となる(ともに $N$ は正の整数である)。この条件は式(1)を使って書き直すと以下になる。

することができる。また、蛍光性材料を発光層にドーピングする場合には、ドーピングした位置をもとに陰極までの光学的距離 $L$ は式(4)を満たすように設定される。干渉の次数を表す正の整数 $N$ が1の場合を採用すると、有機膜(電子輸送層)の膜厚を薄くできるので低電圧駆動に有効である。有機EL素子に用いられる有機材料の屈折率 $n$ は、1.6～1.8程度である。例えば、2層型の素子において有機材料の屈折率 $n = 1.7$ とすると、よく知られた発光材料であるAlmq<sub>3</sub>の発光の中心波長 $\lambda = 510 \text{ nm}$ に対して電子輸送層の最適な膜厚は75 nmとなる。この膜厚は蒸着法によって十分に安定して製膜でき、また励起子の陰極への移動による消光の影響は生じない。発光材料特有の発光スペクトルの例として、図2に分光蛍光光度計を用いて測定したAlmq<sub>3</sub>のフォトルミネッセンス・スペクトル $P(\lambda)$ を示す。

【0026】図2に示したフォトルミネッセンス・スペクトルP( $\lambda$ )と式(1)、式(2)、式(3)とを用いて、屈折率 $n=1.7$ の有機膜について、発光位置から陰極までの距離(電子輸送層の膜厚)が、①38nm、②75nm、③112nm、④150nmの場合について計算した発光スペクトルを図3に示す。膜厚が75nmで発光強度は最大、150nmで最小、38nm、112nmではほぼ中間の値であることがわかる。また、膜厚を少しずつ変化させて計算したスペクトルをもとに、JIS-Z8701-1982にしたがってCIE表色系を計算して求めた輝度値を図4に示す。膜厚が400nm以下においては、輝度の最大と最小が明らかに逆転していることがわかる。

【0027】次に、本実施の形態に係る有機EL素子の作製方法について説明するが、基本的には公知の方法を用いることができる。まず、ガラス基板上にITOなどの透明電極を真空蒸着あるいはスパッタリングなどにより10~300nm程度の膜厚で形成し、これを陽極とする。ITO付のガラス基板として市販されているものが容易に入手可能である。ITO上には正孔輸送層、発光層、電子輸送層等の有機材料を真空蒸着法、スパッタリング法などによって所定の膜厚になるように順次形成する。2層型の素子においては、正孔輸送層あるいは電子輸送層が発光層を兼ねることになる。

【0028】本実施の形態の有機EL素子において用いられる発光層、正孔輸送層、および電子輸送層を形成する材料は、図5に示したように例えば、正孔輸送性の材料としては、トリフェニルジアミン誘導体(TPD)、トリフェニルアミン誘導体(NSD)、 $\alpha$ -ナフチルフェニルジアミン( $\alpha$ -NPD)、フタロシアン類(CuPc、 $H_2$ Pc)、スターバーストポリアミン類(m-MTDA)などが用いられる。電子輸送材料としては、アルミキノリン錯体( $Alq_3$ )、メチルアルミキノリン錯体(4-Methyl-8-hydroxyquinoline:  $Almq_3$ )、ベリリウムキノリン錯体( $Beq_2$ )などを用いることができ、これらの材料は同時に発光性材料としても使用される。オキサジアゾール誘導体(PBD)は、優れた電子輸送材料としてよく知られている。PBDのような電子輸送性の良好な材料を電子輸送層として用いれば、発光層とキャリア輸送層を分離した3層構造、あるいは正孔輸送性発光層を有する2層構造の素子が実現可能である。

【0029】さらに、ドーピング材料としては、クマリン誘導体、キナクリドン、ルブレンなどを用いることができる。ドーピングの方法としては、例えば加熱ボートを用いた共蒸着によって、 $Alq_3$ などの発光材料をホスト材料とし、正孔輸送層との界面近く(約30nm以内)に蛍光材料を数mol%~数十mol%程度ドーピングすることができる。次に、陰極は、金属材料

を抵抗加熱、電子ビーム等による蒸着法や、あるいは合金ターゲットを用いたスパッタリング法などを用いて10~300nm程度の膜厚で形成される。十分な反射率と低抵抗の膜を得るには、好ましくは100nm以上の膜厚にすることが望ましい。陰極に用いられる金属材料としては、仕事関数が小さい金属、例えば、Li(リチウム)、Na(ナトリウム)、Mg(マグネシウム)、Ca(カルシウム)、Sr(ストロンチウム)、Al(アルミニウム)、Ag(銀)、In(インジウム)、Sn(スズ)、Zn(亜鉛)、Zr(ジルコニウム)などの金属元素単体あるいはこれらの合金が用いられる。さらに陰極上に電極保護膜としてLiFなどを陰極の場合と同様の方法で形成してもよい。なお、本実施の形態では、実質的に $\pi$ だけ位相変化する鏡面反射界面を有する金属膜からなる陰極を用いている限りにおいて、素子の積層構成の違いによらず、発光層の位置から陰極までの光学的距離を本発明に基づいて設定することにより、発光効率の改善をすることができる。さらに、有機EL素子に限らず、鏡面反射を利用する類似の面発光素子において、本実施の形態の基本的な考え方を適用することも可能である。

【0030】以下、第1の実施形態の変形例1と変形例2について説明するが、本実施の形態に係る有機EL素子はこれらの実施形態における材料、素子構成だけに限定されるものではない。

#### (1) 変形例1

板厚が1.1mmのITO付ガラス基板を用意し、一般的なレジストを用いたフォトリソグラフィ法によって2mm幅の電極パターンを形成する。次に、この基板を界面活性剤を用いて洗浄し、十分に純水で洗剤を洗い流した後にイソプロピルアルコールの蒸気中で乾燥させ、さらに酸素プラズマ処理によって十分に表面洗浄の汚れを取り除く。このようにして準備した基板を真空蒸着装置内にセットし、正孔輸送材料として $\alpha$ -NPDを抵抗加熱によって真空蒸着して、膜厚が70nmの正孔輸送層を形成する。蒸着条件は、真空度が $2.7 \times 10^{-4}$ Pa、蒸着レートが1nm/秒とし、さらに連続して、 $Almq_3$ を同様に蒸着して75nmの電子輸送性発光層とする。

【0031】次に、ITO電極パターンと2mm幅で直交するような穴のあけられたメタルマスクを基板に密着させて真空蒸着装置内にセットした状態で、アルミニウム(Al)を真空蒸着して膜厚160nmの金属膜を形成し陰極とし、2mm角の点灯領域を得る。Al電極上に膜厚が300nmのLiFを蒸着して保護膜を形成し、不活性ガス(Ar)雰囲気中で、この素子の上に1mm厚のバイレックス(登録商標)ガラスを重ね、紫外線硬化型の接着剤を用いてガラス周辺を封止して、有機EL素子を得る。最大発光強度を示す位置は、 $\alpha$ -NPDと $Almq_3$ の界面付近にあり、陰極までの光学的距

離は、 $nd = (2N - 1)\lambda / 4$ で与えられている関係式を満足する。なお、 $n$ は屈折率、 $d$ は膜厚、 $\lambda$ は発光の中心波長、 $N$ は正の整数である。

#### 【0032】(2)変形例2

正孔注入層として、 $m$ -MTDATAをITO電極上に30nmの膜厚で形成し、つづいて正孔輸送層として、 $\alpha$ -NPDを50nmの膜厚で形成し、さらにAlmq<sub>2</sub>からなる電子輸送性発光層を75nmの膜厚で形成する。その他の構成は、変形例1と同様に有機EL素子を作製する。

【0033】次に、第2の実施形態の有機EL素子について説明する。本実施形態の有機EL素子では、第1の実施形態と同様に陰極が金属反射膜であり、発光層から出て素子の前方に直接向かう光と陰極で反射した光とが干渉効果によって強め合うように、発光位置から陰極までの光学的距離を設定する。陰極が光反射能を有し、反射面での反射光の実質的な位相変化を考慮してなされたものであり、金属材料に限られるわけではないが、反射率が高く、電子注入効率の高い金属材料が最も適している。また、発光材料特有の発光スペクトルの中心波長に対して最適な素子構成となるようにして、最も強い光を有効に素子外部に取り出す。

【0034】有機EL素子内で発光した光は、素子の前方に直接向かう光①と陰極で反射してから素子の前方に向かう光②の2つの経路がある(図1参照)。これらの光は光路差があるので互いに干渉する。発光層から出て素子の前方に直接向かう光と陰極で反射した光の位相差 $\delta$ は、反射面での反射光の位相変化を $\delta r$ と表して、基板法線方向について以下の式(6)で与えられる。

$$\delta = \delta r + 4\pi L / \lambda \quad (6)$$

なお、 $\lambda$ は波長、 $L$ は発光位置から反射面までの光学的距離である。光学的距離 $L$ は、発光位置から反射面までに存在する有機材料(例えば2層型の素子においては電子輸送層)の光学膜厚 $nd$ で与えられる( $n$ は屈折率、 $d$ は膜厚)。発光位置から反射面までに存在する有機材料が複数の層からなる場合には、光学的距離 $L$ は各有機層の光学的距離(光学膜厚)の和となる。発光位置は、最大発光強度を示す正孔輸送層/発光層(電子輸送性)の界面、もしくは発光層(正孔輸送性)/電子輸送層の界面位置で代表することができる。発光層内の発光強度分布が無視できない程度であれば、電子輸送層の膜厚を若干調整(発光強度分布の半分程度だけ厚めに)することに対応することも可能である。

【0035】ここで、陰極材料の複素屈折率を $n' = n - ikr$ ( $n$ 、 $kr$ は光学定数と呼ばれるものである)、陰極と接する透明な有機材料の屈折率を $n$ と表すと、反射面での反射光の位相変化 $\delta r$ は、フレネルの反射の式を用いて求めると図6(a)のような式で表すことができる。また、反射面での光のエネルギー反射率 $R$ は、図6(b)の式で表すことができる。金属の光学定

数は、反射率測定やエリブソメトリ法などによって測定される(なお、金属元素の光学定数は、「薄膜」金原他著、裳華房、209ページや、「光学概論I」辻内順平著、朝倉書店、50ページ(American Institute of Physics Handbook (McGraw-Hill, 1972, p6-118参照)。直接光と反射光の干渉効果として素子外部に出てくる光の強度は、図6(c)で与えられる $D(\lambda)$ に比例する。

10 【0036】発光材料自体の発光スペクトルを $P(\lambda)$ とすると、素子外部で観測される発光スペクトル $I(\lambda)$ は、図6(d)で表される。したがって、干渉の効果としての光の強度は、 $\delta = 2N\pi$ のとき最大で、 $\delta = (2N + 1)\pi$ のとき最小となる(ともに $N$ は正の整数)。この条件は、式(1)を使って書き直すと図7のようになる。本実施の形態の有機EL素子は、図7

(a)の式の条件を満たすように素子を構成する。また、図7(a)で与えられる最大強度の得られる光学的距離 $L$ からのずれ量が $\pm\lambda/8$ の範囲内であれば、少なくとも収束強度値(膜厚が干渉長よりも厚い場合のように干渉効果が生じないときの光の強度値)よりも大きな強度が得られる。すなわち、本実施の形態においては、図7(a)を完全に満足するように素子を構成するが、少なくとも $\pm\lambda/8$ の範囲内で満たしていればよい。また、発光強度が最大になる光学的距離およびその設定可能範囲は波長によって異なるので、各種発光材料の発光スペクトルに応じて設定される。

30 【0037】また、本実施の形態の有機EL素子の構成は、従来技術の2層型や3層型の素子、発光層の最大発光強度を示す界面位置がわかっている場合のすべてにおいて適用することができる。また、蛍光性材料を発光層にドーピングする場合には、ドーピングした位置をもとに陰極までの光学的距離 $L$ は、図7(a)の式を満たすように設定される。干渉の次数を表す正の整数 $N$ が1の場合を採用すれば、有機膜(電子輸送層)の膜厚を薄くできるので低電圧駆動に有効である。有機EL素子に用いられる有機材料の屈折率 $n$ は、1.6~1.8程度である。

40 【0038】例として、Agの蒸着膜の光学定数 $n_r = 0.055$ 、 $kr = 3.32$ について、Agと接する有機材料(電子輸送層)の屈折率を $n = 1.7$ として、界面での位相変化および反射率を図6(a)、(b)から求めると、 $\delta r = 2.195$ [ラジアン]、 $R = 0.973$ となる。この値をもとに、発光材料(電子輸送層を兼ねる)であるAlmq<sub>2</sub>の発光の中心波長 $\lambda = 510$ nmに対して、図7(a)から求めた電子輸送層の最適な膜厚は、98nmとなる。 $\delta r = \pi$ ラジアンとして計算すると75nmであるので、23nmだけ膜厚が厚いことがわかる。この膜厚は、蒸着法によって十分に安定して製膜でき、また励起子の陰極への移動による消光の

影響は生じない。

【0039】発光材料特有の発光スペクトルの例として、分光蛍光光度計を用いて測定した、 $Almq_3$ のフォトルミネッセンス・スペクトル $P(\lambda)$ を第1の実施形態と同様に図2に示す。発光の中心波長は、 $\lambda = 510\text{ nm}$ にみられる。図2に示したフォトルミネッセンス・スペクトル $P(\lambda)$ と図6(c)、(d)を用いて、屈折率 $n = 1.7$ の有機膜について、発光位置から陰極までの距離(電子輸送層の膜厚)が、①61nm、②98nm、③135nm、④173nmの場合について計算した発光スペクトルを図8に示す。膜厚が98nm( $N = 1$ に対応)で発光強度は最大となっており、材料本来の発光スペクトルが再現されている。膜厚が173nmで発光強度は最小、61nm、135nmではほぼ中間の値であることがわかる。

【0040】以下、第2の実施形態の有機EL素子の作製方法について説明する。なお、有機EL素子の作製方法は、基本的には公知の方法を用いることができる。まず、ガラス基板上にITO等の透明電極を真空蒸着あるいはスパッタリング等により10~300nm程度の膜厚で形成し、これを陽極とする。あるいはITO付のガラス基板として市販されているものが容易に入手可能である。ITO上には正孔輸送層、発光層、電子輸送層等の有機材料を真空蒸着法、スピンコーティング法などによって所定の膜厚になるように順次形成する。2層型の素子においては、正孔輸送層あるいは電子輸送層が、発光層を兼ねることになる。

【0041】本実施の形態の有機EL素子において用いられる発光層、正孔輸送層、および電子輸送層を形成する材料は、従来のものを用いることができる。図5に示したような例えば、正孔輸送性の材料としては、トリフェニルジアミン誘導体(TPD)、トリフェニルアミン誘導体(NSD)、 $\alpha$ -ナフチルフェニルジアミン( $\alpha$ -NPD)、フタロシアニン類( $CuPc$ 、 $H_2Pc$ )、スターバーストポリアミン類(m-MTDAT A)などが用いられる。電子輸送材料としては、アルミキノリノール錯体( $Alq_3$ )、メチルアルミキノリノール錯体(4-Methyl-8-hydroxyquinoline:  $Almq_3$ )、ベリリウムキノリン錯体( $Beq_2$ )などがあり、これらの材料は同時に発光性材料としても使用される。オキサジアゾール誘導体(PBD)は、優れた電子輸送材料としてよく知られている。PBDのような電子輸送性の良好な材料を電子輸送層として用いれば、発光層とキャリア輸送層を分離した3層構造、あるいは正孔輸送性発光層を有する2層構造の素子が実現可能である。

【0042】さらに、ドーピング材料としては、クマリン誘導体、キナクリドン、ルブレンなどを用いることができる。ドーピングの方法としては、例えば加熱ボート

をホスト材料とし、正孔輸送層との界面近く(約30nm以内)に蛍光材料を数mol%~数十mol%程度ドーピングすることができる。次に、陰極は、金属材料を抵抗加熱、電子ビームなどによる蒸着法や、あるいは合金ターゲットを用いたスパッタリング法等を用いて10~300nm程度の膜厚で形成される。十分な反射率と低抵抗の膜を得るには、好ましくは100nm以上の膜厚にすることが望ましい。陰極に用いられる金属材料としては、仕事関数が小さい金属、例えば、Li、Na、Mg、Ca、Sr、Ba、Ti、Mn、Al、Ag、In、Sn、Zn、Zrなどの金属元素単体あるいはこれらの合金が用いられる。アルカリ金属類は、有機膜との密着性をよくし、酸素や水分などによる劣化を避けるために、Ag、Alなどとの合金として用いる。さらに陰極上に電極保護膜としてLiF、 $SiO_2$ 等を陰極の場合と同様の方法で形成してもよい。

【0043】各種金属元素の光学定数と反射面における位相変化および反射率を図9に示す。金属面と接する有機材料の屈折率は、 $n = 1.7$ とする。これらの金属はすべて、 $\delta r$ が $\pi/2 \sim \pi$ の範囲内にある。これらの金属元素を陰極に用いて有機EL素子を形成した場合に、電子輸送層の最適な膜厚を図6(a)の式から、干渉の次数が、 $N = 1, 2, 3$ の場合で計算した結果を図10に示す。これら以外の金属やその他の合金などの光学定数、あるいは光学定数の波長分散は、エリブソメトリ法などによって測定可能である。

【0044】以下、第2の実施形態の変形例1~3について説明するが、第2の実施形態の変形例はこれらの材料、素子構成だけに限定されるものではない。

#### (1) 変形例1

陰極を形成する金属材料としては、アルミニウム(Al)を使用する。板厚が1.1mmのITO付ガラス基板を用意し、一般的なレジストを用いたフォトリソグラフィ法によって2mm幅の電極パターンを形成する。次に、この基板を界面活性剤を用いて洗浄し、十分に純水で洗剤を洗い流した後にイソプロピルアルコールの蒸気中で乾燥させ、さらに酸素プラズマ処理によって十分に表面洗浄の汚れを取り除く。このようにして準備した基板を真空蒸着装置内にセットし、正孔輸送材料として $\alpha$ -NPDを抵抗加熱によって真空蒸着して、膜厚が70nmの正孔輸送層を形成する。

【0045】蒸着条件は、真空度が $2.7 \times 10^{-4} \text{ Pa}$ 、蒸着レートが1nm/秒とする。さらに連続して、 $Almq_3$ を同様に蒸着して電子輸送性発光層とした。 $Almq_3$ の膜厚は、式(1)で $N = 1$ として求められる最適な膜厚値87nmにほぼ一致するように設定されている。すなわち、最大発光強度を示す位置は、 $\alpha$ -NPDと $Almq_3$ の界面付近にあり、陰極までの光学的距離は、図11のような関係式を満足していることとなる。次に、ITO電極パターンと2mm幅で直交するよ

うな穴のあけられたメタルマスクを基板に密着させて真空蒸着装置内にセットした状態で、アルミニウム（Al）を真空蒸着して膜厚160nmの金属膜を形成し陰極とし、2mm角の点灯領域を得る。Al電極上に膜厚が300nmのLiFを蒸着して保護膜を形成する。さらに、不活性ガス（Ar）雰囲気中で、この素子の上に1mm厚のバイレックスガラスを重ね、紫外線硬化型の接着剤を用いてガラス周辺を封止して、有機EL素子を得る。

#### 【0046】（2）変形例2

正孔注入層として、m-MTDATAをITO電極上に30nmの膜厚で形成し、つづいて正孔輸送層として、 $\alpha$ -NPDを50nmの膜厚で形成し、さらに変形例1と同様にAlmq3からなる電子輸送性発光層を87nmの膜厚で形成する。その他の構成は、変形例1と同様に有機EL素子を作製する。

#### 【0047】（3）変形例3

陰極を形成する金属材料として、膜厚が150nmのMgAg合金を使用した以外は、変形例2と同じ有機材料を用いて有機EL素子を構成する。陰極の製膜はMgとAgを用いた共蒸着によって行う。MgAg合金の光学定数は、素子を形成する場合と同じ条件でガラス基板上に製膜したサンプルを用いて、エリブソメトリ法によって測定した結果、 $n_r = 0.3$ 、 $k_r = 5$ であった。この光学定数を使って、図12の式から求めた反射面での反射光の位相変化は、 $\delta_r = 2.5$ （ラジアン）となる。電子輸送層の膜厚は、図11のような式から $N = 1$ として求められる膜厚値91nmになるように製膜する。

#### 【0048】

【発明の効果】請求項1記載の発明では、有機多層膜の電子輸送層の光学膜厚 $nd$ は、 $nd = (2N - 1)\lambda / 4$ 、（ $n$ は屈折率、 $d$ は膜厚、 $\lambda$ は発光の中心波長、 $N$ は正の整数）なる関係を満たすので、光の外部取り出し効率を高くすることができ、消費電力の低減を有効に図ることができる。請求項2記載の発明では、有機多層膜の電子輸送性発光層の光学膜厚 $nd$ は、 $nd = (2N - 1)\lambda / 4$ 、（ $n$ は屈折率、 $d$ は膜厚、 $\lambda$ は発光の中心波長、 $N$ は正の整数）なる関係を満たすので、光の外部取り出し効率を高くすることができ、消費電力の低減を容易に実現することができる。請求項3記載の発明では、有機多層膜の電子輸送性発光層の光学膜厚 $nd$ は、 $nd = (2N - 1)\lambda / 4$ 、（ $n$ は屈折率、 $d$ は膜厚、 $\lambda$ は発光の中心波長、 $N$ は正の整数）なる関係を満たすので、光の外部取り出し効率を高くすることができ、消費電力の低減を容易に実現することができる。請求項4記載の発明では、電子輸送性発光層は、正孔輸送層との界面付近に微量の蛍光性材料がドーピングされているので、発光効率を高くでき、キャリアの再結合領域、すなわち発光位置をドーピングによって制御でき、電子輸送

層の光学膜厚による干渉効果をさらに高めることができる。

【0049】請求項5記載の発明では、有機多層膜の電子輸送層の光学膜厚 $nd$ は、 $nd = (2N - 1)\lambda / 4$ 、（ $n$ は屈折率、 $d$ は膜厚、 $\lambda$ は発光の中心波長、 $N$ は正の整数）なる関係を満たすので、光の外部取り出し効率を高くすることができ、消費電力の低減を容易に実現することができる。請求項6記載の発明では、発光層は、微量の蛍光性材料がドーピングされているので、発光効率を高くでき、キャリアの再結合領域、すなわち発光位置をドーピングによって制御でき、電子輸送層の光学膜厚による干渉効果をさらに高めることができる。請求項7記載の発明では、有機多層膜の電子輸送層の光学膜厚 $nd$ は、 $nd = (2N - 1)\lambda / 4$ 、（ $n$ は屈折率、 $d$ は膜厚、 $\lambda$ は発光の中心波長、 $N$ は正の整数）なる関係を満たすので、光の外部取り出し効率を高くすることができ、消費電力の低減を容易に実現することができる。

【0050】請求項8記載の発明では、陰極は、反射率が50%以上の金属膜であるので、干渉効果を有効に取り出すことができる。請求項9記載の発明では、正の整数 $N$ は、1であるので、すなわち1次の干渉を利用することになり、有機膜の膜厚を薄くでき、低電圧駆動に効果があり、また、このときの電子輸送層の膜厚は、励起子の陰極への移動による消光の影響があるほど薄くなく、通常の蒸着法によって容易に制御することができる。請求項10記載の発明では、電子輸送層または電子輸送性発光層の光学膜厚 $nd$ は、発光の中心波長 $\pm \lambda / 8$ 以内の誤差範囲内であるので、干渉効果による発光強度の増強効果を確保し、収束強度値よりも大きな強度が得られ、実質的な膜厚の許容範囲を示すことによって、製造工程および製品の品質管理を容易とすることができる。

【0051】請求項11記載の発明では、有機多層膜の電子輸送層の光学膜厚 $nd$ は、 $nd = (\lambda / 4) (2N - \delta_r / \pi)$ 、 $\delta_r = \arctan (2nk_r / (n^2 - (n_r)^2 - (K_r)^2)) + \pi$ 、（ $n^2 \leq n_r^2 + K_r^2$ ）であり、 $n$ は屈折率、 $d$ は膜厚、 $\lambda$ は発光の中心波長、 $N$ は正の整数）なる関係を満たすので、光の外部取り出し効率を高くすることができ、消費電力の低減を有効に図ることができる。請求項12記載の発明では、有機多層膜の電子輸送性発光層の光学膜厚 $nd$ は、 $nd = (\lambda / 4) (2N - \delta_r / \pi)$ 、 $\delta_r = \arctan (2nk_r / (n^2 - (n_r)^2 - (K_r)^2)) + \pi$ 、（ $n^2 \leq n_r^2 + K_r^2$ ）であり、 $n$ は屈折率、 $d$ は膜厚、 $\lambda$ は発光の中心波長、 $N$ は正の整数）なる関係を満たすので、光の外部取り出し効率を高くすることができ、消費電力の低減を容易に実現することができる。請求項13記載の発明では、有機多層膜の電子輸送性発光層の光学膜厚 $nd$ は、 $nd = (\lambda / 4) (2N - \delta_r / \pi)$ 、 $\delta_r = \arctan$

$a n (2 n k_r / (n^2 - (n_r)^2 - (K_r)^2)) + \pi$ 、 $(n^2 \leq n_r^2 + K_r^2$ であり、 $n$ は屈折率、 $d$ は膜厚、 $\lambda$ は発光の中心波長、 $N$ は正の整数)なる関係を満たすので、光の外部取り出し効率を高くすることができ、消費電力の低減を容易に実現することができる。請求項14記載の発明では、電子輸送性発光層は、正孔輸送層との界面付近に微量の蛍光性材料がドーピングされているので、発光効率を高くでき、キャリアの再結合領域、すなわち発光位置をドーピングによって制御でき、電子輸送層の光学膜厚による干渉効果をさらに高めることができる。

【0052】請求項15記載の発明では、有機多層膜の電子輸送層の光学膜厚 $nd$ は、 $nd = (\lambda/4)(2N - \delta r/\pi)$ 、 $\delta r = \arctan(2nk_r / (n^2 - (n_r)^2 - (K_r)^2)) + \pi$ 、 $(n^2 \leq n_r^2 + K_r^2$ であり、 $n$ は屈折率、 $d$ は膜厚、 $\lambda$ は発光の中心波長、 $N$ は正の整数)なる関係を満たすので、光の外部取り出し効率を高くすることができ、消費電力の低減を容易に実現することができる。請求項16記載の発明では、発光層は、微量の蛍光性材料がドーピングされているので、発光効率を高くでき、キャリアの再結合領域、すなわち発光位置をドーピングによって制御でき、電子輸送層の光学膜厚による干渉効果をさらに高めることができる。請求項17記載の発明では、有機多層膜の電子輸送層の光学膜厚 $nd$ は、 $nd = (\lambda/4)(2N - \delta r/\pi)$ 、 $\delta r = \arctan(2nk_r / (n^2 - (n_r)^2 - (K_r)^2)) + \pi$ 、 $(n^2 \leq n_r^2 + K_r^2$ であり、 $n$ は屈折率、 $d$ は膜厚、 $\lambda$ は発光の中心波長、 $N$ は正の整数)なる関係を満たすので、光の外部取り出し効率を高くすることができ、消費電力の低減を容易に実現することができる。

【0053】請求項18記載の発明では、陰極は、反射率が50%以上の金属膜であるので、干渉効果を有効に取り出すことができる。請求項19記載の発明では、正の整数 $N$ は、1であるので、すなわち1次の干渉を利用することにより有機膜の膜厚を薄くでき、低電圧駆動に効果があり、また、このときの電子輸送層の膜厚は、励起子の陰極への移動による消光の影響があるほど薄くなく、通常の蒸着法によって容易に制御することができる。請求項20記載の発明では、電子輸送層または電子輸送性発光層の光学膜厚 $nd$ は、発光の中心波長 $\pm \lambda/8$ 以内の誤差範囲内であるので、干渉効果による発光強\*

\*度の増強効果を確保し、収束強度値よりも大きな強度が得られ、実質的な膜厚の許容範囲を示すことによる製造工程および製品の品質管理を容易とすることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】有機EL素子における光の干渉を示した図である。

【図2】Almq<sub>3</sub>のフォトルミネッセンス・スペクトルを示した図である。

【図3】第1の実施形態での電子輸送層の膜厚を変えた場合の発光スペクトルの違いを示した図である。

【図4】電子輸送層の膜厚と輝度値の関係を示した図である。

【図5】電子輸送性材料と正孔輸送性材料の構造式を示した図である。

【図6】位相変化 $\delta r$ 、エネルギー反射率 $R$ 、光の強度、発光スペクトル $I(\lambda)$ を求める式を示した図である。

【図7】強度条件に応じた発光位置から反射面までの光学的距離を求める式を示した図である。

【図8】第2の実施形態での電子輸送層の膜厚を変えた場合の発光スペクトルの違いを示した図である。

【図9】各種金属元素の光学定数と反射面における位相変化および反射率を示した図である。

【図10】光学定数の異なる各種金属を陰極とした場合の電子輸送層の最適膜厚を示した図である。

【図11】有機EL素子の電子輸送層の光学膜厚の設定条件(1)を示した図である。

【図12】有機EL素子の電子輸送層の光学膜厚の設定条件(2)を示した図である。

【図13】電子輸送性発光層を有する2層型の有機EL素子の層構成を示す概略断面図である。

【図14】正孔輸送性発光層を有する2層型の有機EL素子の層構成を示す概略断面図である。

【符号の説明】

- 1 ガラス基板
- 2 陽極(透明電極)
- 3 a、13 a 正孔輸送層
- 3 b 正孔輸送性発光層
- 4 a 電子輸送層
- 4 b、14 b 電子輸送性発光層
- 5、15 陰極(金属電極)
- 6 発光位置

【図7】

【図11】

【図12】

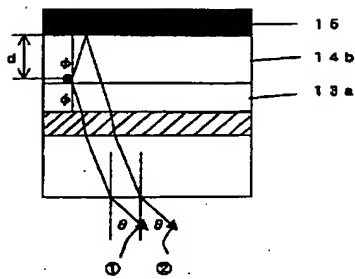
(a) 強度が最大になる条件:  $L = \frac{\lambda}{4} \left( 2N - \frac{\delta r}{\pi} \right)$

$$nd = \frac{\lambda}{4} \left( 2N - \frac{\delta r}{\pi} \right)$$

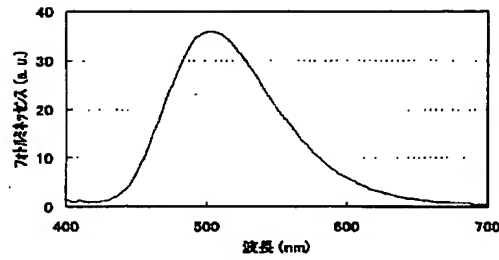
$$\delta r = \arctan \left( \frac{2nk_r}{n^2 - n_r^2 - k_r^2} \right) + \pi \quad (\text{ただし、} n^2 \leq n_r^2 + k_r^2)$$

(b) 強度が最小になる条件:  $L = \frac{\lambda}{4} \left( 2N + 1 - \frac{\delta r}{\pi} \right)$

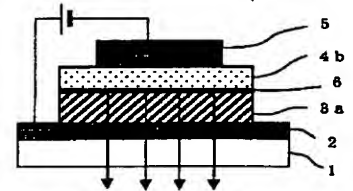
【図1】



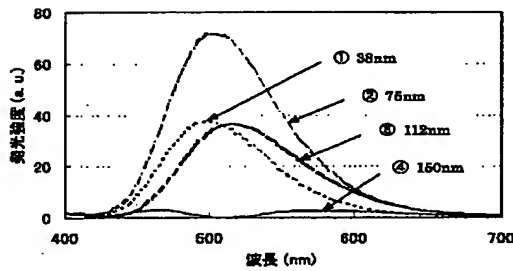
【図2】



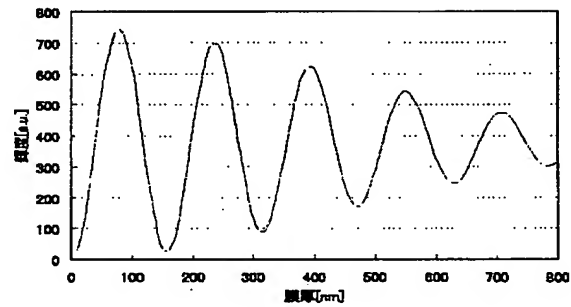
【図13】



【図3】



【図4】



【図6】

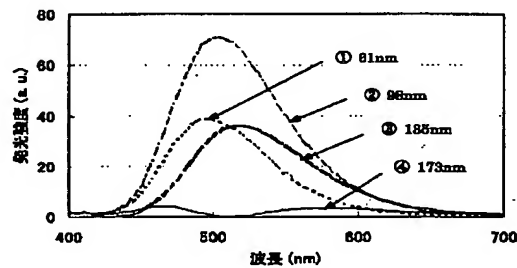
$$(a) \quad \delta r = \arctan\left(\frac{2nk_r}{n^2 - n_r^2 - k_r^2}\right) + \pi \quad (\text{ただし、} n^2 \leq n_r^2 + k_r^2)$$

$$(b) \quad R = \frac{(n - n_r)^2 + k_r^2}{(n + n_r)^2 + k_r^2}$$

$$(c) \quad D(\lambda) = \frac{1+R}{2} + \sqrt{R} \cos \delta$$

$$(d) \quad I(\lambda) = P(\lambda) D(\lambda)$$

【図8】



【図9】

各種金属の光学定数と反射光の位相変化および反射率  
(金属と接する有機材料の屈折率 $n=1.7$ とした)

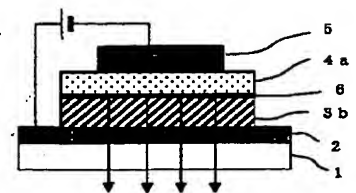
金属元素	光学定数		位相変化	反射率	
	$nr$	$kr$	$\delta r(\text{rad})$	$R$	
Mg	0.57	6.14	2.81	0.829	0.910
Ca	0.27	8.08	2.73	0.888	0.873
Sr	0.63	3.15	2.18	0.693	0.721
Ba	0.69	1.71	1.71	0.545	0.372
Mn	2.49	1.25	2.41	0.787	0.113
Ni	1.79	1.88	2.11	0.671	0.222
Pd	1.92	1.31	2.08	0.683	0.119
Al	0.93	6.33	2.63	0.838	0.895
Cu	0.756	2.462	1.99	0.634	0.575
Au	0.331	2.324	1.89	0.802	0.794
Ag	0.055	3.32	2.20	0.699	0.973

【図10】

光学定数の異なる各種金属を隣接とした場合の  
電子伝導層の最適厚さ ( $\lambda=510\text{nm}$ ,  $n=1.7$ )

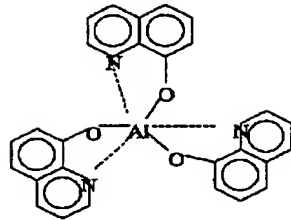
金属元素	N=1	N=2	N=3
Mg	88	238	388
Ca	85	235	385
Sr	88	248	398
Ba	109	259	409
Mn	92	242	392
Ni	100	250	400
Pd	100	250	400
Al	87	237	387
Cu	102	252	402
Au	105	256	405
Ag	96	248	398
$\delta r = \pi$ の場合	76	225	375

【図14】

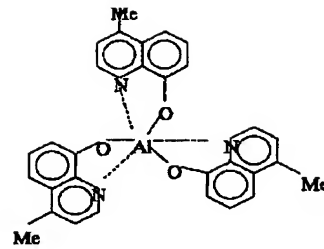




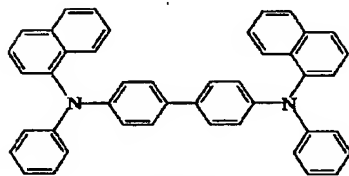
【図5】



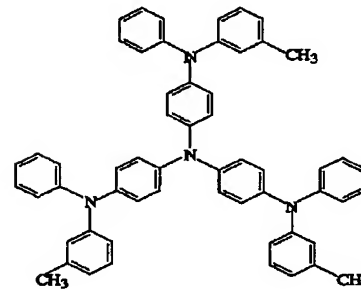
Aluminium 8-hydroxyquinolate(Alq3)



Tris(4-Methyl-8-quinolinolato)Aluminium(Almq3)



Alpha-NPD



m-MTDATA

フロントページの続き

(72)発明者 松木 ゆみ  
東京都大田区中馬込1丁目3番6号 株式  
会社リコー内  
(72)発明者 木村 興利  
東京都大田区中馬込1丁目3番6号 株式  
会社リコー内

(72)発明者 岡田 崇  
東京都大田区中馬込1丁目3番6号 株式  
会社リコー内  
(72)発明者 加藤 拓司  
東京都大田区中馬込1丁目3番6号 株式  
会社リコー内

Fターム(参考) 3K007 AB03 CA01 CB01 CC01 DA01  
DB03 EB00